

46-  
66-

**This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

**Defective images within this document are accurate representations of  
the original documents submitted by the applicant.**

**Defects in the images may include (but are not limited to):**

- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORLED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

United States Patent and Trademark  
Office  
(Box PCT)  
Crystal Plaza 2  
Washington, DC 20231  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 28 September 1998 (28.09.98)	
International application No. PCT/JP98/00713	Applicant's or agent's file reference F-348PCT
International filing date (day/month/year) 23 February 1998 (23.02.98)	Priority date (day/month/year) 24 February 1997 (24.02.97)
Applicant NAKAMURA, Masanori et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
14 September 1998 (14.09.98)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  
\_\_\_\_\_

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer K. Takeda
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38



PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

MIYAZAKI, Chikara  
Nishimura Building  
6-5, Tanimachi 1-chome  
Chuo-ku, Osaka-shi  
Osaka 540-0012  
JAPON

Date of mailing (day/month/year)

27 August 1998 (27.08.98)

Applicant's or agent's file reference

F-348PCT

## IMPORTANT NOTICE

International application No.

PCT/JP98/00713

International filing date (day/month/year)

23 February 1998 (23.02.98)

Priority date (day/month/year)

24 February 1997 (24.02.97)

Applicant

SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. et al

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
**CA,EP,US**

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
**None**

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on  
27 August 1998 (27.08.98) under No. WO 98/36906

**REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)**

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))**

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

# PATENT COOPERATION TREATY

PCT/JP98/00713



PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

## INFORMATION CONCERNING ELECTED OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

To:

MIYAZAKI, Chikara  
Nishimura Building  
6-5, Tanimachi 1-chome  
Chuo-ku, Osaka-shi  
Osaka 540-0012  
JAPON

Date of mailing (day/month/year)  
28 September 1998 (28.09.98)

Applicant's or agent's file reference  
F-348PCT

### IMPORTANT INFORMATION

International application No.  
PCT/JP98/00713

International filing date (day/month/year)  
23 February 1998 (23.02.98)

Priority date (day/month/year)  
24 February 1997 (24.02.97)

Applicant  
SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. et al

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP : AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
National : CA, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

None

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" before the expiration of 30 months from the priority date before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer:

K. Takeda

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38

PCT  
E P **U S** 国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第 40、41 条)  
[PCT 18 条、PCT 規則 43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 F-348PCT	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記 5 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 98/00713	国際出願日 (日.月.年) 23.02.98	優先日 (日.月.年) 24.02.97
出願人(氏名又は名称) 積水化学工業株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第 41 条(PCT 18 条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第 I 欄参照)。

2. ☐ 発明の単一性が欠如している(第 II 欄参照)。

3. ☐ この国際出願は、ヌクレオチド及び/又はアミノ酸配列リストを含んでおり、次の配列リストに基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願と共に提出されたもの

☐ 出願人がこの国際出願とは別に提出したもの

☐ しかし、出願時の国際出願の開示の範囲を越える事項を含まない旨を記載した書面が添付されていない

☐ この国際調査機関が書換えたもの

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第 47 条(PCT 規則 38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

B32B27/32, C08J5/12, B29C65/02, B29C65/48

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

B32B27/32, C08J5/12, B29C65/02, B29C65/48

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996

日本国公開実用新案公報 1971-1998

日本国実用新案登録公報 1996-1998

日本国登録実用新案公報 1994-1998

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 53-41375, A (コニクユク・エムバラーゲ・インダストリー・ファン・レ ール・ビー・ブイ) 14. 4月. 1978 (14. 04. 78) & US,	1-4
Y	4355076, A&CA, 1109378, A&DE, 2735 256, A&FR, 2360403, A	5-8
X	JP, 3-138135, A (ヘキスト・アクション・ゲゼルシャフト) 12. 6 月. 1991 (12. 06. 91) & EP, 418773, A&D E, 3931451, A	1-4, 9- 12
X	JP, 54-106583, A (日本石油化学株式会社) 21. 8 月. 1979 (21. 08. 79) (ファミリーなし)	1-4, 9- 12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 05. 98

国際調査報告の発送日

26.05.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

芦原 ゆりか



4F

9161

電話番号 03-3581-1101 内線 3432

## C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 57-59721, A (日東電気工業株式会社) 10. 4 月. 1982 (10. 04. 82) (ファミリーなし)	1-4
X	J P, 60-34834, A (積水成型工業株式会社) 22. 2 月. 1985 (22. 02. 85) (ファミリーなし)	1-4
X	J P, 49-53264, A (大日本印刷株式会社) 23. 5月. 1974 (23. 05. 74) (ファミリーなし)	1-4
Y	J P, 49-107069, A (松下電工株式会社) 11. 10 月. 1974 (11. 10. 74) (ファミリーなし)	5-8

PCT

世界知的所有権機関  
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願



<b>(51) 国際特許分類6</b> B32B 27/32, C08J 5/12, B29C 65/02, 65/48	A1	<b>(11) 国際公開番号</b> WO98/36906  <b>(43) 国際公開日</b> 1998年8月27日(27.08.98)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP98/00713  <b>(22) 国際出願日</b> 1998年2月23日(23.02.98)  <b>(30) 優先権データ</b> 特願平9/39091 1997年2月24日(24.02.97)  <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> 積水化学工業株式会社(SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.)(JP/JP) 〒530-8565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka, (JP) <b>(72) 発明者 ; および</b> <b>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ)</b> 中村雅則(NAKAMURA, Masanori)(JP/JP) ✓ 刈茅孝一(KARUKAYA, Koichi)(JP/JP) ✓ 野口和裕(NOGUCHI, Kazuhiro)(JP/JP) ✓ 山本 哲(YAMAMOTO, Satoru)(JP/JP) ✓ 〒601-8105 京都府京都市南区上鳥羽上調子町2-2 積水化学工業株式会社内 Kyoto, (JP) <b>(74) 代理人</b> 弁理士 宮崎主税, 外(MIYAZAKI, Chikara et al.) 〒540-0012 大阪府大阪市中央区谷町1丁目6番5号 西村ビル Osaka, (JP)	<b>(81) 指定国</b> CA, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>添付公開書類</b> 国際調査報告書	
<b>(54) Title: MOLDED POLYOLEFIN AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME</b>  <b>(54) 発明の名称</b> ポリオレフィン成形体及びその製造方法  <b>(57) Abstract</b> A molded polyolefin which is excellent in mechanical properties and dimensional stability under heating and can be easily produced without the use of a reinforcement of a different kind, e.g., glass fibers. The molded polyolefin comprises a stretched polyolefin material so as to have an average coefficient of linear expansion at 20°C to 80°C of $5 \times 10^{-5}$ ( $^{\circ}\text{C}$ ) or lower. The process for producing the same comprises the steps of depositing a low-molecular compound in which polyolefins are soluble on the surface of a stretched polyolefin material having an average coefficient of linear expansion at 20°C to 80°C (C of $5 \times 10^{-5}$ ( $^{\circ}\text{C}$ ) or lower and then bonding the deposit by pressing and heating.		

(5.7) 要約

ガラス繊維などの異種強化材料を用いることなく、機械的物性及び加熱寸法安定性に優れ、容易に製造し得るポリオレフィン成形体及び製造方法を提供する。

ポリオレフィンから構成されており、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるようにポリオレフィン延伸材料を含むポリオレフィン成形体、並びに $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料の表面に、ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させ、しかる後、加圧・加熱により接着する工程を含むポリオレフィン成形体の製造方法。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード (参考情報)

AL	アルバニア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SN	セネガル
AM	アルメニア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
AT	オーストリア	GB	英国	LV	ラトヴィア	TD	チャード
AU	オーストラリア	GE	グルジア	MC	モナコ	TG	トーゴ
AZ	アゼルバイジャン	GH	ガーナ	MD	モルドバ	TJ	タジキスタン
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BB	バルバドス	GW	ギニア・ビサウ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TR	トルコ
BE	ベルギー	GR	ギリシャ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
BF	ブルキナ・ファソ	GU	グアム	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
BG	ブルガリア	DE	ドイツ	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
BJ	ベナン	IE	アイルランド	MW	モザンビーク	US	米国
BR	ブラジル	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
BY	ベラルーシ	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ベトナム
CA	カナダ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラヴィア
CC	中央アフリカ共和国	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CF	中央アフリカ共和国	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CH	スイス	KR	韓国	PL	ポーランド		
CI	コートジボワール	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
CM	カメルーン	KZ	カザフスタン	RO	ルーマニア		
CN	中国	LA	ラオス	RU	ロシア		
CU	キューバ	LC	セントルシア	SD	スーダン		
CY	キプロス	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン		
CZ	チェコ	SK	スロバキア	SG	シンガポール		
DE	ドイツ			SI	スロヴェニア		
DK	デンマーク						

## 明 細 書

## ポリオレフィン成形体及びその製造方法

5

## 発明の分野

本発明は、ポリオレフィン成形体及びその製造方法に関し、より詳細には、高い剛性を有し、かつ温度変化による寸法変化が小さい、すなわち熱寸法安定性に優れた  
10 実質的にポリオレフィンのみからなるポリオレフィン成形体及びその製造方法に関する。

## 従来技術

日本国、特公平 7 - 8 4 0 3 4 号公報には、ガラス繊維などの異種強化材料を用いないポリオレフィン系繊維  
15 強化樹脂成形体が開示されている。ここでは、ポリオレフィン樹脂をマトリクスとし、シラン架橋超高分子量ポリエチレン繊維を強化材として含有させることにより、ポリオレフィン成形体が構成されている。このポリオレ  
20 フィン成形体は、ガラス繊維等の異種の強化材料を使用していないため、機械的強度に優れているだけでなく、軽量化を図ることができる。

しかしながら、上記先行技術に記載のポリオレフィン成形体では、強化材料として、超高分子量ポリエチレン  
25 のシラン架橋体を用いているため、製造工程において、

大量の可塑剤を使用する必要があった。そのため、製造工程が非常に複雑であり、上記ポリオレフィン成形体を工業的に生産することは困難であった。

5 発明の概要

本発明の目的は、ガラス繊維等の異種強化材料を用いていないにも関わらず、機械的物性及び熱寸法安定性に優れており、さらに容易に製造し得るポリオレフィン成形体及びその製造方法を提供することにある。

10 本願の第1の発明は、ポリオレフィンから構成されており、かつ20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるようにポリオレフィン延伸材料を含むことを特徴とするポリオレフィン成形体である。

15 この場合、好ましくは、上記ポリオレフィン延伸材料としては、高密度ポリエチレンが用いられる。

また、上記高密度ポリエチレンの重量平均分子量は10万～50万の範囲であることがより好ましい。

さらに好ましくは、上記ポリオレフィン延伸材料はシート状の形状を有する。

20 本願の第2の発明は、20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料の表面に、該ポリオレフィン延伸材料を溶解する低分子化合物を付着させる工程と、前記低分子化合物を付着させた後、加圧・加熱により前記ポリオレフィン延伸材料  
25 を接着する工程とを含むことを特徴とするポリオレフィ

ン成形体の製造方法である。この場合、上記ポリオレフィン延伸材料同士を接着して一体化し、ポリオレフィン成形体を得てもよく、あるいは、上記ポリオレフィン延伸材料をポリオレフィン未延伸材料と接着して一体化し、  
5 ポリオレフィン成形体を得てもよい。

第2の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、好ましくは、上記低分子化合物としては重合性モノマーが用いられる。

また、第2の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、好ましくは、上記ポリオレフィン延伸材料としては、シート状のものが用いられ、該ポリオレフィン延伸シートに低分子化合物が塗布された後、該ポリオレフィン延伸シートがポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートに加圧・加熱により接着される。  
10

また、上記第2の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、より好ましくは、ポリオレフィン延伸材料は20～80℃の平均線膨張率がマイナスを示すポリオレフィン延伸シートであり、該ポリオレフィン延伸シートが、20～80℃の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートと積層され、加圧・加熱により接着される。  
15  
20

本願の第3の発明は、20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料に、該ポリオレフィン延伸材料の融点よりも低い融点を有するポリオレフィン層を被覆する工程と、前記ポリオ  
25

レフィン層の被覆後に、ポリオレフィン延伸材料の融点未満の温度で加圧・加熱することによりポリオレフィン被覆を軟化もしくは溶融させて該ポリオレフィン延伸材料を接合する工程とを含むことを特徴とするポリオレフィン成形体の製造方法である。この場合、上記ポリオレフィン延伸材料同士を接合して一体化し、ポリオレフィン成形体を得てもよく、あるいは、上記ポリオレフィン延伸材料をポリオレフィン未延伸材料と接合して一体化し、ポリオレフィン成形体を得てもよい。

5  
10  
15  
なお、本明細書におけるポリオレフィンの融点については、DSC（示差走査型熱量計）を用い、測定時の昇温速度を10℃/分として測定された融解ピーク温度をいうものとする。但し、延伸したサンプルについては銅片に巻き付けた状態、すなわち、一定の張力下で測定された融解ピーク温度をいう。

20  
第3の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、好ましくは、上記ポリオレフィン延伸材料は20～80℃の平均線膨張率がマイナスを示す複数のポリオレフィン延伸シートであり、ポリオレフィン被覆層が形成された該複数のポリオレフィン延伸シート間に、20～80℃の平均線膨張率がプラスであるポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートが介在され、加圧・加熱により接合される。

25  
また、第2、第3の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、好ましくは、上記ポリオレフィン延伸

材料として、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を一度融解したものが用いられる。

5 本願の第4の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法は、前記ポリオレフィン延伸材料が、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を融解する工程と、前記熱処理が施された前記ポリオレフィン延伸材料の融点未満であって、表面を融解し得る温度で加圧・  
10 加熱により該ポリオレフィン延伸材料を接合する工程とを含むことを特徴とする。この場合、上記ポリオレフィン延伸材料同士を接合して一体化し、ポリオレフィン成形体を得てもよく、あるいは、上記ポリオレフィン延伸材料をポリオレフィン未延伸材料と接合して一体化し、  
15 ポリオレフィン成形体を得てもよい。

以下、本発明の詳細を説明する。

(第1の発明に係るポリオレフィン成形体)

第1の発明に係るポリオレフィン成形体では、上述のように、 $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるように、少なくともポリオレフィン延伸材料が含まれている。ここで、線膨張率とは、物質の  
20 寸法が温度によって膨張していく割合を示す尺度である。線膨張率の測定方法としては、TMA (機械分析) により、昇温中の物質の寸法を精密に測定していく方法が一般的であるが、本明細書においては、後述の実施例で示  
25

5      すように、20℃及び80℃における寸法の差から簡易的にこの温度範囲の平均線膨張率を計算する方法で評価した。20℃から80℃の間にはポリオレフィンの線膨張率において大きな変曲点が存在しないため、上記のよ  
うな簡易な方法により、平均線膨張率を十分に評価し得る。

10      一般には、ポリオレフィンの20℃～80℃における平均線膨張率は、延伸されていない状態では、 $5 \times 10^{-5}$  (／℃) よりも大きい。本発明にかかるポリオレフィン成形体では、ポリオレフィン延伸材料を含むため、上記のように20℃～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下とされている。言い換えれば、平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるように、ポリオレ  
15      フィン成形体にポリオレフィンに延伸材料が含まれている。平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) を超えると、熱寸法安定性が悪くなり、かつ機械的物性が低下する。好ましくは、20℃～80℃の平均線膨張率は0もしくは0に近い値、具体的には $-2 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-5}$  (／℃) 程度とされ、それによって熱寸法安定性がより一層  
20      高められる。

25      本発明に係るポリオレフィン成形体において、20℃～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下となるように、少なくともポリオレフィン延伸材料を含ませる態様については、特に限定されるものではないが、好ましくは、シート状の態様でポリオレフィン延伸材料が

含まれる。

また、本発明のポリオレフィン成形体は、全体がポリ  
オレフィンから構成されており、上記のように少なくと  
もポリオレフィン延伸材料を含む。従って、ポリオレフ  
5 イン成形体全体がポリオレフィン延伸材料で構成されて  
もよく、あるいは、ポリオレフィン延伸材料以外が、ポ  
リオレフィン未延伸材料により構成されていてもよい。

よって、例えば、ポリオレフィン延伸材料としてポリ  
オレフィン延伸シートを用いる場合、ポリオレフィン延  
10 伸シートを、ポリオレフィン未延伸シートと積層し、後  
述の低分子化合物や重合性モノマーなどの接着性材料を  
介在させて加圧・加熱により接着してもよい。あるいは、  
複数のポリオレフィン延伸シートのみを上記接着性材料  
を介在させて加圧・加熱により接着し、一体化すること  
15 によりポリオレフィン成形体を構成してもよい。

また、使用するポリオレフィン樹脂については、特に  
限定されるものではなく、例えば、低密度ポリエチレン、  
直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ホモ  
ポリプロピレン、ブロックポリプロピレンなどを用いる  
20 ことができる。もっとも、ポリオレフィン延伸材料を構  
成するためのポリオレフィンについては、好ましくは、  
延伸後の弾性率を考慮すると理論弾性率の高いポリエチ  
レンを用いることが好ましく、特に、結晶性の高い高密  
度ポリエチレンがより好ましい。

25 上記ポリオレフィンの分子量については、特に限定さ

れないが、好ましくは、重量平均分子量が50万以下のポリオレフィンが用いられる。重量平均分子量が50万を超えると、ポリオレフィン延伸材料を得るに際し、延伸原反シートの成形が困難となり、また、延伸性も悪くなり、高倍率延伸が不可能となることがある。なお、ポリオレフィンの重量平均分子量の下限については、特に限定されるものではないが、重量平均分子量が10万より小さくなると、樹脂自体がもろくなるため、延伸性が損なわれることがある。

従って、好ましくは、重量平均分子量が10万～50万の範囲にあるポリオレフィン、より好ましくは重量平均分子量がこの範囲にある高密度ポリエチレンが用いられる。

上記重量平均分子量の測定方法としては、加温したオージクロルベンゼンなどの溶剤に試料を溶かした後、カラムに注入し、溶出時間を測定する、いわゆるゲルパーミエーションクロマトグラフィー法（高温GPC法）により測定するのが一般的であり、本明細書においても、この方法により測定された重量平均分子量を記載することとする。

また、上記重量平均分子量の範囲を、メルトフローレート（以下、MI）から考慮すると、約0.1以上、20以下の範囲が好ましい。MIがこの範囲外では、高倍率延伸が困難となることがある。なお、メルトフローレートとは、JIS K 6760に規定されている熱可

塑性樹脂の熔融粘度を表す指標をいう。

(第2の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法)

第2の発明では、20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料の表面に、該ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させ、しかる後加圧・加熱によりポリオレフィン延伸材料を他のポリオレフィン延伸材料もしくはポリオレフィン未延伸材料に接着する。

この場合、ポリオレフィン延伸材料は、好ましくは、ポリオレフィン延伸シートの形態で用意される。また、ポリオレフィン延伸材料に用いられるポリオレフィン樹脂としては、第1の発明において説明したように、特に限定されず、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ホモポリプロピレン、ブロックポリプロピレンなどを用いることができ、延伸後の弾性率を考慮すると、好ましくは理論弾性率の高いポリエチレンが用いられ、より好ましくは結晶性の高い高密度ポリエチレンが用いられる。

上記ポリオレフィン延伸シートを得るに際し、ポリオレフィン以外に、必要に応じて架橋助剤や光ラジカル重合開始剤等を添加しておいてもよい。架橋助剤としては、トリアリルシアヌレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ジアリルフタレートなどの多官能モノマーを例示することができ、光ラジカル重合開始剤として

は、ベンゾフェノン、チオキサントン、アセトフェノン等を例示することができる。これらの架橋助剤や光ラジカル重合開始剤の添加量は特に限定されるものではないが、架橋を速やかに進行させるには、通常、ポリオレフィン延伸シートを構成しているポリオレフィン100重量部に対し、1.0～2.0重量部の範囲とすることが好ましい。

延伸前のポリオレフィンシートを得る方法については、特に限定されるものではなく、上述したポリオレフィンを混練機で混練した後、シートダイを通してシート状に押し出し、冷却する方法を採用することができる。ポリオレフィンシートの厚みについては、0.5～4mmの範囲とすることが好ましい。0.5mm未満では、延伸後のシート厚みが薄くなりすぎ、取扱いに際しての強度が十分な大きさとならないことがあり、4mmを超えると延伸が困難となることがある。

また、上記のようにして得た延伸前のポリオレフィンシートを延伸し、ポリオレフィン延伸シートを得るに際しての延伸倍率については、使用するポリオレフィンの種類によっても異なるが、20℃～80℃の平均線膨張率がマイナスとなるように延伸倍率を設定することが好ましい。より好ましくは、この延伸倍率は、20～40倍の範囲とされる。20倍未満の延伸では、ポリオレフィンの種類の如何に拘わらず、20～80℃における平均線膨張率をマイナスの値に制御することが困難となる

ことがあり、また機械的強度を高める効果も小さいことがある。延伸倍率が40倍を超えると、延伸操作の制御が困難となることがある。

5       ポリオレフィン延伸シートを得るための延伸温度については、特に限定されるものではないが、85℃～120℃の範囲とすることが好ましい。120℃を超えると、シートが切れ易くなり、高倍率延伸成形が困難となる  
10       ことがあり、85℃未満では、延伸シートが白化し易くなり、やはり高倍率延伸が困難となることがある。

10       延伸方法についても、特に限定されるものではないが、通常の一軸延伸方法、特にロール延伸法が好適に用いられる。ロール延伸法とは、速度の異なる2対のロール間に延伸原反を挟み、延伸原反を加熱しつつ引っ張る方法  
15       であり、一軸方向のみに強く分子配向させることができる。この場合、2対のロールの速度比が延伸倍率となる。

比較的厚いシートの場合には、ロール延伸法のみでは円滑な延伸が困難となることがあり、そのような場合には、ロール延伸に先立ちロール圧延処理を行ってもよい。ロール圧延処理は、一对の反対方向に回転する圧延ロール間に、該圧延ロール間の間隔よりも厚い延伸原反を挿入し、原反の厚みを減少させると同時に長さ方向に伸長させることにより行われる。ロール圧延処理が施された  
20       シートは、予め配向処理されているので、次のロール延伸により、一軸方向に円滑に延伸される。

25       上記延伸工程において上記延伸温度を実現するには、

シートの予熱温度、ロール温度及び／または雰囲気温度を調節すればよい。

第2の発明では、上記のようにして得られる20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料、好ましくはポリオレフィン延伸  
5 シートの表面に、該ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着し、しかる後、加圧・加熱により該ポリオレフィン延伸材料を接着する。

一般に、ポリオレフィンは低分子化合物には溶解しないと考えられているが、ポリオレフィンの結晶転移温度以上の温度になると、低分子化合物に対して溶解し易くなる。例えば、ポリエチレンでは、約60℃以上の温度に達すると、低分子化合物に非常に溶解し易くなる。第  
10 2の発明では、このようなポリオレフィンの性質を利用し、上記低分子化合物をポリオレフィン延伸材料表面に付着させ、ポリオレフィン延伸材料表面を溶解し、ポリ  
15 オレフィン延伸材料の接着性を高めている。

上記低分子化合物としては、ポリオレフィンに対して親和性が高いもの、すなわちポリオレフィンの溶解度パラメーター (S P 値) に近い溶解度パラメーターを有するものが好ましく、例えばポリオレフィンの分子構造と類似の構造を有する低分子化合物として、オクタン、ノ  
20 ナン、デカンなどを用いることが好ましく、また、極性を有しないベンゼン、トルエンまたはキシレンなどを用いることが好ましい。  
25

また、好ましくは、上記低分子化合物としては、ポリオレフィンを溶解する重合性モノマーが用いられる。

上記重合性モノマーとしては、ポリオレフィンを溶解する重合性モノマーであれば特に限定されず、通常、不飽和二重結合を分子中に含む化合物が用いられ、1分子中の不飽和二重結合数は2以上であってもよく、すなわち多官能化合物であってもよい。しかしながら、ポリオレフィんに親和性が低いモノマー、すなわち、S P 値（溶解性パラメーター）が使用するポリオレフィンと大きく離れたモノマーについては、加温した場合のポリオレフィンの溶解性が低くなるため、好ましくない。

さらに、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランなどのビニルシランのように、立体障害が大きくかつ単独重合し難いもの、あるいは無水マレイン酸のように官能基の極性が強く、単独重合し難いモノマーについては、他の成分を加えて共重合するなどの方法を採用し、重合性を高める必要がある。

上記重合性モノマーの具体例としては、スチレン；ジビニルベンゼン；ジアリルフタレート；トリメチロールプロパントリメタクリレート，トリプロピレングリコールジアクリレート，グリシジルメタクリレートなどのメタクリルまたはアクリルモノマーを挙げることができるが、なかでも、ポリエチレンと親和性の高いスチレンモノマーが好適に用いられる。

また、重合性を高めるために、上記重合性モノマーに、

さらに過酸化物を加えることが好ましい。上記過酸化物としては、ジクミルパーオキサイド、ジターシャリーブチルパーオキサイド、ターシャリーブチルパーオキシピバレイト、ターシャリーブチルパーオキシイソブチレートなどを好適に用いることができる。

上記過酸化物を添加する場合、重合性モノマーとの混合割合などについては特に限定されるものではないが、通常、重合性モノマー 100 重量部に対し、過酸化物は 0.01 ~ 1 重量部の範囲で用いられる。過酸化物が 0.01 重量部未満の場合には、過酸化物を加えたことによる重合性改善効果が十分得られないことがあり、1 重量部を超えると、それ以上重合性を高める効果が増大しないことがある。

上述した低分子化合物をポリオレフィン延伸材料表面に付着させる方法についても、特に限定されるものではない。例えば、低分子化合物をロールコーターなどの適宜の塗布装置を用い、ポリオレフィン延伸材料表面に付着させればよい。この場合、低分子化合物のポリオレフィン延伸材料表面への塗布量については、ポリオレフィン延伸材料 100 重量部に対し、低分子化合物 0.01 ~ 2.0 重量部の範囲とすることが望ましい。0.01 重量部未満では、十分な接着効果を得ることが困難となることがあり、2.0 重量部を超えると、逆に接着効果が阻害されることがある。

また、上記低分子化合物として重合性モノマーを用い

る場合には、工程が容易であるため、重合性モノマー溶液をポリオレフィン延伸材料表面に塗布する方法が好適に用いられる。この場合、塗布量については、ポリオレフィン延伸シート 100 重量部に対し、重合性モノマー（溶剤を含まない）0.01～2.0 重量部の範囲が好ましい。0.01 重量部未満では、十分な接着効果を得ることが困難となることがあり、2.0 重量部を超えると、逆に接着効果が阻害されることがある。

低分子化合物を塗布する場合の具体的な塗布方法についても特に限定されるものではなく、ポリオレフィン延伸シートを積層する前、または重ね合わせた積層体を、低分子化合物、低分子化合物溶液あるいは重合性モノマーと上記過酸化物との混合溶液に浸漬した後、一對のロール間で搾ることによりポリオレフィン延伸シート表面に均一に塗布する方法を挙げることができる。

また、上記ポリオレフィン延伸シートについては、耐熱性を高めるために、特に、低分子化合物を用いた加熱条件下の接着に耐え得るために、あるいは、最終的なポリオレフィン成形体の耐熱性や耐クリープ性を高めるために、架橋処理を施してもよい。架橋は、電子線照射あるいは紫外線照射によって行い得る。

電子照射量については、使用するポリオレフィン延伸シートの組成及び厚みによっても異なるが、通常、1～20 Mrad、好ましくは3～10 Mradとされる。また、電子線照射により架橋する場合、架橋助剤をポリ

オレフィン延伸シートに加えておけば、架橋が円滑に進行する。

紫外線照射量については、通常、 $50 \sim 800 \text{ mW/cm}^2$ 、好ましくは、 $100 \sim 500 \text{ mW/cm}^2$  とされる。紫外線照射により架橋する場合には、光重合開始剤や架橋助剤を加えておけば、紫外線照射による架橋を容易に行うことができる。

架橋の程度は後述する測定法によるゲル分率が  $50 \sim 90\%$  程度であるのが好ましい。

第2の発明では、上記のようにポリオレフィン延伸材料表面にポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させた後、加圧・加熱により接着する。この接着に際しては、ポリオレフィン延伸材料同士を、接着してもよく、例えば、ポリオレフィンを溶解する低分子化合物が付着されたポリオレフィン延伸シートを複数枚接着してもよい。あるいは、ポリオレフィンを溶解する低分子化合物が付着されたポリオレフィン延伸シートを、ポリオレフィン未延伸材料、例えばポリオレフィン未延伸シートと接着してもよい。

接着に際しての加熱及び加圧条件については、使用するポリオレフィン延伸材料及び重合性モノマーによって異なるため、一義的には定め得ないが、通常、 $0.1 \sim 5 \text{ kg/cm}^2$  の範囲の圧力、及びポリオレフィンの融点以下の温度が好ましい。圧力が上記範囲外では、成形中に積層体の形状が乱れるおそれがあり、また接着に際

しての加熱温度が、ポリオレフィンの融点を超えると、成形中に収縮等により積層体の形状が乱れる可能性があり、かつ線膨張率にも悪影響を与えることがある。

5 この加圧・加熱により接着する具体的な方法についても特に限定されるものではないが、例えば、加熱された対のプレス板を用い、一對のプレス板間に複数枚のポリオレフィン延伸シートを上記重合性モノマーを間に介在させて積層したものを配置し、上記圧力をかけつつ、接着・一体化することにより行い得る。

10 その後、通常は、冷却プレス等により冷却するが、場合によっては自然放冷してもよい。加熱・加圧時間及び冷却時間については、特に限定されるものではないが、通常、それぞれ2分～10分程度の時間で行い得る。

次に、第2の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法の好ましい例を説明する。この好ましい例では、20 15 20～80℃の平均線膨張率がマイナスを示すポリオレフィン延伸シートと、20～80℃の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートとを積層し、各シート間に上記低分子化合物を介在させて加圧・20 加熱することにより一体化し、ポリオレフィン成形体を得る。

この好ましい例では、まず、20℃～80℃の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートと、20℃～80℃の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸25 延伸もしくは未延伸シートとを用意する。

前者、すなわち、 $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートについては、上述したポリオレフィン延伸シートを用意する工程と同様に行われる。従って、この工程については、前述した説明を  
5 援用することにより省略する。

$20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートを用意する工程については、上記平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートと、延伸倍率を異ならせることを除いては、同様  
10 にして行うことができる。

すなわち、ポリオレフィンシートの $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率は、未延伸の場合、通常 $10 \times 10^{-5}$ 程度である。また、ポリオレフィンシートを延伸した場合、延伸倍率を高めるほど、上記平均線膨張率を低めること  
15 ができる。従って、 $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率がプラスのポリオレフィンシートを得る工程については、未延伸のポリオレフィンシートを用いる方法、あるいはポリオレフィンシートを低倍率に延伸する方法が挙げられる。

20 低倍率に延伸する方法については、使用するポリオレフィンによっても異なるが、通常、20倍未満に延伸することにより達成し得る。20倍以上に延伸した場合には、上記平均線膨張率をプラスの値に制御することが困難となることがある。

25 なお、上記平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延

伸もしくは未延伸シートを構成する材料及び架橋処理等については、前述した平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートと同様であるため、その説明を援用することにより省略する。

5       次に、上記ポリオレフィン延伸シートと、ポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートとを、ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を間に介在させて加圧・加熱により接着する。この低分子化合物については、前述した各種低分子化合物を用いることができ、かつ加圧・加熱により接着する工程についても、前述した方法により行い得る。

10       上記好ましい例においても、ポリオレフィン延伸シートと、ポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートとを接着した後、通常、積層体を冷却する。この冷却についても、前述した方法に従って行い得る。

15       上記好ましい例では、20～80℃の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートと、プラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートとの積層数や厚みを調整することにより、得られるポリオレフィン成形体の全体

20       の全体の20～80℃の平均線膨張率を $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下に容易に設定し得る。

25       より具体的な例を挙げると、20～80℃の平均線膨張率がマイナス約1の値を持つポリオレフィン延伸シートと上記線膨張率がプラス約10の値を持つポリオレフィン未延伸シートとを交互に積層してもよく、その場合、

両者の厚みの比を、前者の合計 1 に対して後者の合計は通常 5 以下、好ましくは 4 以下とすることにより、得られるポリオレフィン成形体の 20 ~ 80 °C の平均線膨張率を  $5 \times 10^{-5}$  ( / °C ) 以下とすることができる。

5 (第 3 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法)

第 3 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、20 ~ 80 °C の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  ( / °C ) 以下であるポリオレフィン延伸材料に、その延伸材料の  
10 融点より低い融点を有するポリオレフィンを被覆し、しかる後、ポリオレフィン延伸材料の融点未満で加圧・加熱し、ポリオレフィン被覆層を軟化もしくは熔融し、ポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸材料を接合する。

15 ここで、20 ~ 80 °C の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  ( / °C ) 以下であるポリオレフィン延伸材料については、前述した第 2 の発明と同様のものを用いることができ、この場合においても、好ましくは、ポリオレフィン延伸シートが用いられる。ポリオレフィン延伸シートを用意  
20 する工程については、第 2 の発明において説明した工程に従って行い得る。

次に、上記ポリオレフィン延伸材料表面に、ポリオレフィン延伸材料の融点よりも低い融点を有するポリオレフィンを被覆するが、この被覆方法についても特に限定  
25 されず、被覆層を構成するためのポリオレフィンを熔融

し、ポリオレフィン延伸材料表面に適宜の方法で塗布すればよい。このポリオレフィン延伸材料の融点より低い融点を有するポリオレフィンとしては、例えば、延伸材料が高密度ポリエチレンの場合には、直鎖状低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、あるいはその他のポリオレフィン系各種熱可塑性エラストマーなどを用いることができる。

また、第3の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法においては、上記低融点ポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸材料を用い、該ポリオレフィン延伸材料の融点未満で加圧・加熱により該ポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸材料を接合するが、この場合の加圧・加熱の具体的な方法及び接合工程については、第2の発明の場合と同様にして行い得る。

また、第3の発明においても、上記ポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸材料のみを複数用意し、加圧・加熱により接合し、ポリオレフィン成形体としてもよく、あるいは、上記ポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸材料に、他のポリオレフィン延伸もしくは未延伸材料を加圧・加熱により接合し、ポリオレフィン成形体を得てもよい。

第3の発明においても、好ましくは、上記ポリオレフィン延伸材料としては、ポリオレフィン延伸シートが用いられる。この場合、ポリオレフィン延伸シートの融点よりも低い融点を有するポリオレフィンで被覆されたポ

5      リオレフィン延伸シートを用意し、しかる後、ポリオレフィン延伸シートの融点未満の温度にポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸シートを加圧・加熱し、ポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートあるいはポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸シートに接合してもよい。

10      さらに、第 3 の発明においても、第 2 の発明の場合と同様に、好ましくは、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がマイナスを示すポリオレフィン延伸シートを、上記ポリオレフィン延伸シートの融点よりも低い融点を有するポリオレフィンで被覆した後、該ポリオレフィンで被覆された複数枚のポリオレフィン延伸シート間に、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がプラスであるポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートを介在させて、上記ポリオレフィン延伸シートの融点未満に加圧・加熱することによりポリオレフィン成形体を得てもよい。上記  $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートを用意する工程、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がプラスであるポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートを用意する工程については、第 2 の発明の好ましい例の場合と同様であるため、前述した説明を援用することとする。

（第 4 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法）

25      第 4 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5} (/\text{C})$

以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を一度融解し、しかる後、該ポリオレフィン延伸材料の融点未満であって、表面を融解し得る温度にて加圧・加熱により接合する。

5       この場合、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料は、第2の発明において用意したポリオレフィン延伸材料と同様であるため、第2の発明において行った説明を援用することにより、その説明を省略する。

10       第4の発明では、上記ポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層のみを一度融解する。この熱処理は、表面層のみを融解し、中心部分を融解させないように行われる。上記熱処理により、延伸材料の表面層のみにおいて、分子配向が緩和される。中央部分については、延伸状態にあるため、一方向に分子配向している。従って、  
15       中心部分に比べて、表面層が低い温度で融解する。よって、接合に際しての加熱温度を、中央部分の融点未満の温度、より具体的には、表面層のみを融解し、延伸状態が保たれている中心部分を融解しない温度とすることにより、  
20       表面層のみを融解し、容易にかつ強固に接合することが可能となる。

      上記表面層を融解する最初の熱処理については、ポリオレフィン延伸材料の表面に、ポリオレフィンを溶解する前述の低分子化合物を塗布した後、加熱乾燥し、  
25       低分子化合物に接した表面部分のみを局部的に融解するよう

に行ってもよい。あるいは、上記低分子化合物を用いることなく、ポリオレフィン延伸材料表面を加熱し、表面層のみを融解してもよい。

5 上記熱処理の具体的な方法については、極めて短い時間でポリオレフィン延伸材料の表面を融点以上に加熱する方法であれば特に限定されず、例えば融点以上の温度に設定された加熱ロールにポリオレフィン延伸材料を押し当てる方法などを挙げることができる。

10 接合に際しては、第2、第3の発明の場合と同様に行い得るが、接合温度を融点未満であって表面を融解し得る温度に精密に制御することが望ましい。例えば、ポリオレフィン延伸材料として、高密度ポリエチレンを用いた場合には、融点未満であって融点近傍の135～140℃の間に接合温度を制御することが望ましい。

15 上記熱処理を施し、表面層の分子配向を緩和させることにより、接合に際して融点未満の温度に加熱することにより、表面層のみを融解させてポリオレフィン延伸材料を容易にかつ強固に接合することができる。高密度ポリエチレンの無配向状態（本来）の融点（DSCで測定  
20 される融解ピーク温度：測定条件としては10℃/分の昇温速度とする）としては133～140℃の間にあるが、延伸して分子が配向、結晶化した場合には140～150℃の間になり、融点（DSCで測定される融解ピーク温度：測定条件としては一定張力下で10℃/分の  
25 昇温速度とする）が上昇する。第4の発明はこの現象に

着目してなされたものであり、延伸シートを熱処理し、その表面の配向結晶化状態を解除することにより、例えば、表面付近のポリエチレンの融点を $133 \sim 140^{\circ}\text{C}$ の間に低下させる。この状態で全体を上記したように  
5  $135 \sim 140^{\circ}\text{C}$ の間に加熱して接合を行うことによりシート内部の延伸配向結晶状態を保持したままシートの接合一体化が可能となる。この場合、第2、第3の発明の場合と同様に、ポリオレフィン延伸材料同士を接合し、一体化してポリオレフィン成形体を得てもよく、あるいはポリオレフィン延伸材料を熱処理した後、ポリオレ  
10 フィン未延伸材料や他のポリオレフィン延伸材料と接合してポリオレフィン成形体を得てもよい。

また、第4の発明に係る上記熱処理は、前述した第2、第3の発明においても好適に用いることができる。すな  
15 わち、上記ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を用いた第2の発明や、ポリオレフィン延伸材料の融点よりも低い融点を有するポリオレフィンでポリオレフィン延伸材料を被覆する第3の発明においても、これらの処理に先立ち、あるいはこれらの処理後に、上記熱処理を施  
20 すことにより、ポリオレフィン延伸材料の表面層のみを融解し、表面層の分子配向を緩和させておくことにより、融点未満であって表面を融解し得る温度に加熱して接合すれば、より一層機械的強度に優れたポリオレフィン成形体を得ることができる。

25 作用

第 1 の発明に係るポリオレフィン成形体では、20 ～ 80℃の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下となるようにポリオレフィン延伸材料が含まれているので、ポリオレフィン成形体の熱寸法安定性及び機械的物性が高められる。

本発明に係るポリオレフィン成形体において、上記ポリオレフィン延伸材料として、高密度ポリエチレンを用いた場合には、延伸後に十分な弾性率を有し、かつ結晶性に優れ、従って機械的強度においてより一層優れたポリオレフィン成形体を得ることができる。

さらに、ポリオレフィン延伸材料として、重量平均分子量が 10 万～50 万の範囲にある高密度ポリエチレンを用いた場合には、延伸が容易であり、かつ高倍率延伸された高密度ポリエチレン延伸材料を容易に得ることができ、機械的強度の高いポリオレフィン成形体を容易に得ることができる。

本発明に係るポリオレフィン成形体において、上記ポリオレフィン延伸材料としてシート状のものを用いた場合には、通常のシート成形法に従ってポリオレフィンシートを容易に得ることができ、かつ慣用されている延伸方法に従ってポリオレフィン延伸シートを容易に得ることができる。また、シート状のポリオレフィン延伸材料を用い、複数枚のシートを積層し、接合することにより、本発明に係るポリオレフィン成形体を容易に得ることができる。

第 2 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料表面に、ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させ、しかる後加圧・加熱により接着する。従って、上記低分子化合物によりポリオレフィン延伸材料表面が溶解されるため、ポリオレフィン延伸材料を強固に接合することができ、該ポリオレフィン延伸材料を含むポリオレフィン成形体の熱寸法安定性及び機械的強度を効果的に高め得る。

第 2 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法において、上記低分子化合物として重合性モノマーを用いた場合には、該重合性モノマーが重合することにより内部に低分子化合物が残存しないので、ポリオレフィン延伸材料がポリオレフィン延伸材料もしくは未延伸材料に強固に接合され、熱寸法安定性及び機械的強度に優れたポリオレフィン成形体を得ることができる。

第 2 の発明において、ポリオレフィン延伸材料としてシート状のものを用いた場合には、上記低分子化合物によりポリオレフィン延伸シート表面が溶解されるため、ポリオレフィン延伸シートを強固に接合することができる。

第 2 の発明において、ポリオレフィン延伸材料として、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がマイナスを示すポリオレフィン延伸シートと、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートとを積

層する場合には、これらのシート間に低分子化合物が介在されて、加圧・加熱により接着される。従って、低分子化合物によりシート表面が溶解されるので、シート同士が強固に接合される。よって、熱寸法安定性及び機械的強度に優れたポリオレフィン成形体を容易に得ることができる。

しかも、上記 20 ～ 80 °C の平均線膨張率がマイナスを示すポリオレフィン延伸シートと、20 ～ 80 °C の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートの積層枚数を制御することにより、ポリオレフィン成形体全体の 20 ～ 80 °C における平均線膨張率を  $5 \times 10^{-5}$  ( / °C ) 以下に容易に制御することができる。

第 3 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、20 ～ 80 °C の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  ( / °C ) 以下であるポリオレフィン延伸材料に、該延伸材料の融点より低い融点を有するポリオレフィンを被覆する。従って、上記ポリオレフィン延伸材料の融点未満で加圧・加熱し、被覆されているポリオレフィンを軟化もしくは融解させることにより、該ポリオレフィン延伸材料をポリオレフィン延伸材料もしくは未延伸材料に強固に接合することができる。従って、熱寸法安定性に優れ、かつ機械的強度に優れた本発明に係るポリオレフィン成形体を容易に提供することができる。

第 3 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法においても、20 ～ 80 °C の平均線膨張率がマイナスを示

す複数のポリオレフィン延伸シートと、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率がプラスであるポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートとを積層する場合には、これらの積層数を制御することにより、全体としてのポリオレフィン成形体の平均線膨張率を、 $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下に容易に制御することができる。

第4の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を一度融解する。従って、表面層の分子配向が緩和される。よって、ポリオレフィン延伸材料をその融点未満であって表面を融解し得る温度に加圧・加熱することにより、ポリオレフィン延伸もしくは未延伸材料に強固に接合することができる。

第4の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法についてさらに詳述すると、その要件は、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面を融解する工程と、前記熱処理が施された前記ポリオレフィン延伸材料の、延伸配向により結晶化されている厚さ方向中央部の融点未満であって、前記熱処理を受けて一度融解し分子配向が緩和された表層部分の融点より高い温度で、加圧・加熱することにより、厚さ方向中央部の配向状態を維持したまま、表層のポリオレフィン層のみを再融解して、ポリオレフィン延伸材料を接合する工程とを含むこととな

る。

よって、熱寸法安定性に優れかつ機械的強度に優れた本発明に係るポリオレフィン成形体を容易に得ることができるのである。

5

## 好ましい実施例の説明

### 実施例 1

高密度ポリエチレン（商品名：HY540、三菱化学社製、MI = 1.0、融点 133℃、重量平均分子量 30 万）100 重量部に対して、ベンゾフェノン（光重合開始剤）1 重量部を配合し、30 mm 二軸押出機にて樹脂温度 200℃で熔融混練し、Tダイにてシート状に押出し、冷却ロールにて冷却し、厚み 1.0 mm、幅 100 mm の未延伸シートを得た。

15

上記未延伸シートを用い、表面温度 100℃に設定された 6 インチロール（小平製作所製）を用いて圧延倍率 8 倍にロール圧延し、その後、得られた圧延シートを繰り出し速度 2 m/分のロールで繰り出し、雰囲気温度が 85℃に設定された加熱炉を通して、引き取り速度 8 m/分のロールで引き取り、4 倍にロール延伸し、巻き取った。さらに、得られたシートに、両面より高圧水銀灯を 5 秒間照射して架橋処理を施した。最後に、得られたシートに無張力下にて 130℃で 1 分間の緩和処理を施した。

20

上記操作を経て得られた延伸シートは、幅 50 mm、

厚み 0.09 mm で透明であった。なお、総延伸倍率は約 30 倍であった。

得られた延伸シートのゲル分率を後述の測定法で測定したところ、約 70 % であった。また、線膨張率（後述の測定方法による）は、 $-1.4 \times 10^{-5}$  であった。なお、この延伸シートの融点〔DSC（示差走査熱量計）におけるピーク温度〕は 149 °C であった。

高密度ポリエチレン（商品名：HY540、三菱化学社製、MI = 1、融点 133 °C、重量平均分子量 30 万）を 30 mm 二軸押出機にて樹脂温度 200 °C で熔融混練し、T ダイにてシート状に押出し、冷却ロールにて冷却し、厚み 0.4 mm、幅 50 mm の未延伸シートを得た。この未延伸シートの線膨張率は、 $1.0 \times 10^{-5}$  であった。

上記した 2 種のポリエチレンシート、すなわち上記延伸シートと、線膨張率  $1.0 \times 10^{-5}$  の未延伸シートに、低分子化合物溶液として表 1 に示す過酸化物と重合性モノマーとの混合溶液をロールコーターにより均一に片面の表面に塗布した後、それぞれ 10 枚づつを溶液塗布面と非塗布面とが接するように交互に積層した。なお、重合性モノマー（溶剤を含まない）塗布量はポリエチレン樹脂 100 重量部に対して約 1 重量部とした。

得られた積層体を、表面温度 120 °C に制御されたプレス機を用いて、プレス圧力  $1 \text{ kg/cm}^2$  で、7 分間プレスし、重合性モノマーを重合させポリエチレン成形

体を得た。その後プレスよりポリエチレン成形体を取り出し、水冷プレスに挟み、プレス圧力  $1.0 \text{ kg/cm}^2$  でプレスしながら冷却し、実施例 1 のポリエチレン成形体を得た。

- 5 得られた板状のポリエチレン成形体サンプルは、幅  $65 \text{ mm}$ 、厚み  $4.1 \text{ mm}$  であった。このサンプルの物性を以下の評価法にて評価し、表 2 に結果を示した。

(引張強度、引張弾性率)

- 10 J I S K 7 1 1 3 の引っ張り試験方法に準じて、サンプルの引っ張り物性を評価し、表 2 に結果を記載した。

(ゲル分率の測定法)

- 15 サンプル  $40 \text{ mg}$  を  $130^\circ\text{C}$  のキシレンに  $24$  時間浸漬した後、不溶解分の重量を測定し、その不溶解分の重量の溶解前のサンプル重量に対する重量%を計算し、ゲル分率とした。

(平均線膨張率)

- 20 ポリオレフィン成形体サンプルに約  $150 \text{ mm}$  間隔の標線を記入した後、 $20^\circ\text{C}$  の恒温槽中で  $1$  時間放置し、標線間距離を  $20^\circ\text{C}$  の状態で測定する。次いで、サンプルを  $80^\circ\text{C}$  の恒温槽中で  $1$  時間放置した後、同様に標線間距離を測定する。この操作を  $3$  回繰り返し、 $2$  回目と  $3$  回目の  $20^\circ\text{C}$  と  $80^\circ\text{C}$  の各標線間距離の平均を求め、下記の式により平均線膨張率を計算した。

25

数 1

平均線膨張率

$$= \frac{(\text{80℃の標線間距離}) - (\text{20℃の標線間距離})}{60 \times (\text{20℃の標線間距離})}$$

5

表 1

10

	配合薬品	配合部数 (重量部)
実施例 及び 比較例	スチレンモノマー（低分子化合物，和光純薬社製）	100
	ターシャリーブチルパーオキシビバレイト （過酸化物，化薬アクゾ社製）	0.25
	ビニルベンゼン（重合促進剤，和光純薬社製）	1

15

実施例 2

実施例 1 において、未延伸シートの厚みを 0.3 mm としたこと以外は、全て実施例 1 と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

20

実施例 3

実施例 1 において、未延伸シートの厚みを 0.2 mm としたこと以外は、全て実施例 1 と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

25

実施例 4

実施例 1 において、延伸シートのみを 40 枚重ねて積

層体を形成したこと以外は、実施例 1 と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 実施例 5

2 種のポリエチレンシート、すなわち延伸シートと、  
5 線膨張率  $10 \times 10^{-5}$  の未延伸シート（厚み 0.2 mm）の表面に、過酸化物及び重合性モノマーの混合溶液に代えて、低分子化合物としてのノナンをロールコーターを用いて均一に塗布したこと（塗布量はポリオレフィン 100 重量部に対し 10 重量部／片面）を除いては、  
10 実施例 3 と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 実施例 6

上記実施例 1 で得た延伸シート（融点 149℃）の両表面に厚み 30  $\mu$ m の直鎖状低密度ポリエチレンフィルム  
15 ム（三菱化学社製、商品名：UF230、融点 124℃）を 1 kg/cm<sup>2</sup>、130℃の条件で加熱被覆してなる被覆層形成延伸シートを用いること、積層体のプレス成形温度を 130℃としたこと、並びに低分子化合物を用いなかったことを除いては、実施例 3 と同様にして  
20 リエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 実施例 7

上記延伸シート（融点 150℃）を、180℃の表面温度に制御された加熱ロールと 30℃の表面温度に制御された冷却ロールとの間を、線圧 2 kg/cm 及び速度  
25 2 m/分で表裏 1 回ずつ通過させ、延伸シートの表面層

のみを融解する熱処理を施した。この表面層が融解されている延伸シートを用いたこと、重合性モノマー溶液を用いなかったこと、並びに積層体のプレス成形温度を138℃としたこと以外は、実施例4と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 実施例 8

実施例7と同様の熱処理を施し、表面が融解された延伸シートを用いたことを除いては、実施例5と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 10 実施例 9

実施例7と同様に熱処理することにより表面が融解された延伸シートを用い、該延伸シートにポリエチレン被覆を施したことを除いては、実施例6と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 15 実施例 10

延伸シートを幅1mmに切断し、細長いストリップ状もしくは繊維状とし、このストリップ状延伸シートを40層積層し、積層体を形成したこと以外は、実施例4と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 20 比較例 1

実施例1において、未延伸シートのみを15枚重ねて積層体を形成したこと以外は、全て実施例1と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

#### 比較例 2

25 延伸シートのみを、延伸シート間に過酸化物及び重合

性モノマーの混合溶液を介在させることなく20枚積層したことを除いては、実施例1と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得ようとしたが、シート同士が接着せず、成形できなかった。

5      比較例 3

延伸シート（融点150℃）のみを20枚積層し、170℃の温度でプレス成形したことを除いては、実施例1と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

10     比較例 4

積層体のプレス成形温度を170℃としたことを除いては、実施例6と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

比較例 5

15     積層体のプレス成形温度を170℃としたことを除いては、実施例7と同様にしてポリエチレン成形体サンプルを得、評価した。

20

25

表 2

5

		未延伸 シート 厚み (mm)	低分子 化合物	剥れ フィ 被覆	熱 処理	接合 温度 (℃)	引張 強度 (kg/ cm <sup>2</sup> )	引張 弾性率 (kg/ cm <sup>2</sup> )	線膨張率 (/℃)	成形体 の 厚み (mm)		
10	実 施 例	1	0.4	有	無	無	120	2200	51000	$4.1 \times 10^{-5}$	4.1	
		2	0.3	有	無	無	120	3100	68000	$2.5 \times 10^{-5}$	3.3	
		3	0.2	有	無	無	120	4050	144000	$0.5 \times 10^{-5}$	2.5	
		4	無	有	無	無	120	8050	249000	$-0.4 \times 10^{-5}$	3.4	
		5	0.2	有	無	無	120	4100	151000	$0.2 \times 10^{-5}$	2.6	
		6	0.2	無	有	無	130	3700	112000	$0.9 \times 10^{-5}$	2.7	
		7	無	無	無	有	138	7800	258000	$-1.5 \times 10^{-5}$	3.1	
		8	0.2	有	無	有	120	3870	142000	$0.9 \times 10^{-5}$	2.5	
		9	0.2	無	有	有	130	3400	100400	$1.0 \times 10^{-5}$	2.8	
		10	無	有	無	無	120	7450	210500	$-0.8 \times 10^{-5}$	3.3	
20	比 較 例	1	0.4	有	無	無	120	340	12000	$10.9 \times 10^{-5}$	4.2	
		2	シート界面が接着できず、成形できなかった。									—
		3	無	有	無	無	170	410	19000	$9.8 \times 10^{-5}$	3.5	
		4	0.2	無	有	無	170	280	9800	$12.1 \times 10^{-5}$	2.9	
		5	無	無	無	有	170	400	18500	$10.1 \times 10^{-5}$	3.1	

表 2 より、比較例 1 では、延伸ポリエチレンシート層  
を含まず、ポリエチレン成形体サンプルの  $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$   
の平均線膨張率が  $10.9 \times 10^{-5}$  と  $5 \times 10^{-5}$  ( $^{\circ}\text{C}$ )  
より大きいためか、引張強度及び引張弾性率が低か  
5 った。

また、比較例 2 では、重合性モノマーやノナンを用い  
なかったためか、延伸シート間の界面で接着することが  
できず、成形できなかった。

比較例 3 では、延伸倍率 30 倍の延伸シートのみを用  
10 い、ポリオレフィン成形体サンプルの平均線膨張率が  $9.8 \times 10^{-5}$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) と高く、引張強度及び引張弾性率が  
低かった。

また、比較例 4, 5 においては、それぞれ、プレス成  
形温度が  $170^{\circ}\text{C}$  と、延伸シートの融点よりも高い温度  
15 であるためか、得られたポリオレフィン成形体サンプル  
の平均線膨張率が、それぞれ、 $12.1 \times 10^{-5}$  及び  $10.1 \times 10^{-5}$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) と高く、引張強度及び引張弾性  
率が低かった。

これに対して、実施例 1 ~ 10 では、延伸ポリエチレ  
ンシート層を含んでおり、かつポリエチレン成形体の  $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率が  $4.1 \times 10^{-5}$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) 以  
20 下であるため、引張強度及び引張弾性率が高かった。

なお、実施例 4, 7, 10 において平均線膨張率がマ  
イナスの値となっているのは、延伸ポリエチレンシート  
25 のみを用いているためである。

### 発明の効果

本発明に係るポリオレフィン成形体では、 $20^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$ 以下であるように、少なくともポリオレフィン延伸材料を含むように構成されているので、熱寸法安定性に優れ、かつ機械的物性も高められる。従って、剛性の高いポリオレフィン成形体を提供することができる。また、ガラス繊維などの異種の強化材料を用いる必要がないため、上記のように剛性の高いポリオレフィン成形体の軽量化も果たし得る。

さらに、特公平7-84034号公報に記載の先行技術では、超高分子量ポリエチレンのシラン架橋体を用いているため、大量の可塑剤を使用する必要があったのに対し、本発明に係るポリオレフィン成形体では、このような超高分子量ポリエチレンのシラン架橋体を用いる必要がないため、大量の可塑剤を使用する必要がない。よって、製造工程の簡略化を図ることができ、高剛性及び軽量のポリオレフィン成形体を工業的に容易に量産することができる。

また、第2の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料の表面に、該ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させ、しかる後、加圧・加熱により接着するため、上記低分子化合物によりポリオレフィン延伸材料表面が溶解されるので、ポリオレフィン延伸材料表面層の分子配向が緩和さ

れる。従って、加圧・加熱によりポリオレフィン延伸材料を接着した場合、接着強度を高めることができ、従って、熱寸法安定性に優れ、かつ機械的物性に優れた本発明に係るポリオレフィン成形体を提供することが可能となる。

また、上記ポリオレフィン延伸材料として、ポリオレフィン延伸シートを用いる場合には、通常のポリオレフィンシートの成形及び延伸工程によりポリオレフィン延伸シートを容易に得ることができ、かつ平均線膨張率のコントロールも延伸倍率の制御により容易に行うことができる。

本願の第3の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料に、該ポリオレフィン延伸材料の融点よりも低い融点を有するポリオレフィンを被覆し、しかる後延伸材料の融点未満の温度で加圧・加熱により該ポリオレフィン延伸材料を接合する。従って、上記接着に際し、被覆されているポリオレフィンが融解することにより、ポリオレフィンで被覆された上記ポリオレフィン延伸材料を他のポリオレフィンや上記ポリオレフィンで被覆されたポリオレフィン延伸材料に接着した場合の接着強度を十分な大きさとすることができる。また、このようにして得られたポリオレフィン成形体では、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$ の平均線膨張係数が $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料を含

むため、請求項 1 に記載の発明と同様に、熱寸法安定性に優れ、機械的強度に優れたポリオレフィン成形体を提供することができる。

第 4 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法では、20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃)以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を融解し、しかる後ポリオレフィン延伸材料の融点未満であって、表面を融解し得る温度で加圧・加熱することにより該ポリオレフィン延伸材料を接合するため、  
5  
10  
15  
上記熱処理により表面層の分子配向が緩和される。従って、該ポリオレフィン延伸材料をその融点未満であって、表面を融解し得る温度に加圧・加熱することによりポリオレフィン延伸もしくは未延伸材料と接合した場合、接合強度を効果的に高めることができ、熱寸法安定性に優れ、かつ機械的強度に優れた本発明に係るポリオレフィン成形体を提供することができる。

さらに、第 2、第 3 の発明に係るポリオレフィン成形体の製造方法において、20～80℃の平均線膨張率がマイナスを示すポリオレフィン延伸シートと、20～80℃の平均線膨張率がプラスであるポリオレフィン延伸  
20  
25  
もしくは未延伸シートとを積層する場合、20℃～80℃の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シート及びプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートは、通常のポリオレフィンシートの成形及び延伸方法を用いて容易に得ることができる。よって、これらの組

み合わせを制御することにより、全体としての平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン成形体を容易に得ることができる。

5

10

15

20

25

## 請 求 の 範 囲

1. ポリオレフィンから構成されており、かつ 20～80℃の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるように、ポリオレフィン延伸材料を含むことを特徴とするポリオレフィン成形体。  
5
2. 前記ポリオレフィン延伸材料が高密度ポリエチレンからなることを特徴とする請求項 1 に記載のポリオレフィン成形体。  
10
3. 前記高密度ポリエチレンの重量平均分子量が 10 万～50 万の範囲にあることを特徴とする請求項 2 に記載のポリオレフィン成形体。
4. 前記ポリオレフィン延伸材料が、シート状であることを特徴とする請求項 1～3 のいずれかに記載のポリオレフィン成形体。  
15
5. 20～80℃の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料の表面に、該ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させる工程と、  
20
- 前記低分子化合物を付着させた後、加圧・加熱により前記ポリオレフィン延伸材料を接着する工程とを含むことを特徴とするポリオレフィン成形体の製造方法。
6. 前記低分子化合物が、重合性モノマーである請求項 5 に記載のポリオレフィン成形体の製造方法。
- 25 7. 前記ポリオレフィン延伸材料がシート状であり、該

ポリオレフィン延伸シートが、ポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートに加圧・加熱により接着される請求項 5 または 6 に記載のポリオレフィン成形体の製造方法。

5 8. 前記ポリオレフィン延伸材料が  $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートであり、  
 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートと積層され、加圧・加熱により接着されることを特徴とする請求項 5 ～ 7 のいずれかに記載のポリオレフィン成形体の製造方法。

10 9.  $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料に、該ポリオレフィン延伸材料の融点よりも低い融点を有するポリオレフィン層を被覆する工程と、

15 前記ポリオレフィン層の被覆後に、ポリオレフィン延伸材料の融点未満の温度で加圧・加熱することによりポリオレフィン被覆を軟化もしくは溶融させて該ポリオレフィン延伸材料を接合する工程とを含むことを特徴とするポリオレフィン成形体の製造方法。

20 10. 前記ポリオレフィン延伸材料が、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がマイナスを示す複数のポリオレフィン延伸シートであり、ポリオレフィン被覆層が形成された該複数のポリオレフィン延伸シート間に、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がプラスであるポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートを介在させ、加圧・加熱により接合する  
25 ことを特徴とする請求項 9 に記載のポリオレフィン成形

体の製造方法。

5 1 1. 前記ポリオレフィン延伸材料が、20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$ （/℃）以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を一度融解したものであることを特徴とする請求項5～10のいずれかに記載のポリオレフィン成形体の製造方法。

1 2. 20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$ （/℃）以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面を融解する工程と、

10 前記熱処理が施された前記ポリオレフィン延伸材料の融点未満であって、表面を融解し得る温度で加圧・加熱により該ポリオレフィン延伸材料を接合する工程とを含むことを特徴とする請求項5～10のいずれかに記載のポリオレフィン成形体の製造方法。

15

20

25

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/00713

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>6</sup> B32B27/32, C08J5/12, B29C65/02, B29C65/48

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>6</sup> B32B27/32, C08J5/12, B29C65/02, B29C65/48

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1998

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1998 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1998

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 53-41375, A (Koninklijke Emballage Industrie Van Leer B.V.),	1-4
Y	April 14, 1978 (14. 04. 78) & US, 4355076, A & CA, 1109378, A & DE, 2735256, A & FR, 2360403, A	5-8
X	JP, 3-138135, A (Hoechst AG.), June 12, 1991 (12. 06. 91) & EP, 418773, A & DE, 3931451, A	1-4, 9-12
X	JP, 54-106583, A (Nippon Oil Co., Ltd.), August 21, 1979 (21. 08. 79) (Family: none)	1-4, 9-12
X	JP, 57-59721, A (Nitto Electric Industrial Co., Ltd.), April 10, 1982 (10. 04. 82) (Family: none)	1-4
X	JP, 60-34834, A (Sekisui Seikei Kogyo K.K.), February 22, 1985 (22. 02. 85) (Family: none)	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
May 18, 1998 (18. 05. 98)Date of mailing of the international search report  
May 26, 1998 (26. 05. 98)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/00713

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 49-53264, A (Dainippon Printing Co., Ltd.), May 23, 1974 (23. 05. 74) (Family: none)	1-4
Y	JP, 49-107069, A (Matsushita Electric Works, Ltd.), October 11, 1974 (11. 10. 74) (Family: none)	5-8

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

B 3 2 B 2 7 / 3 2, C 0 8 J 5 / 1 2, B 2 9 C 6 5 / 0 2, B 2 9 C 6 5 / 4 8

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

B 3 2 B 2 7 / 3 2, C 0 8 J 5 / 1 2, B 2 9 C 6 5 / 0 2, B 2 9 C 6 5 / 4 8

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996

日本国公開実用新案公報 1971-1998

日本国実用新案登録公報 1996-1998

日本国登録実用新案公報 1994-1998

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 53-41375, A (ユニーク・エンバラー・インダストリー・ファン・レール・ビー・ブイ) 14. 4月. 1978 (14. 04. 78) & US, 4355076, A&CA, 1109378, A&DE, 2735256, A&FR, 2360403, A	1-4
Y		5-8
X	J P, 3-138135, A (ヘキスト・アクション・ゲゼルシャフト) 12. 6月. 1991 (12. 06. 91) & EP, 418773, A&D E, 3931451, A	1-4, 9-12
X	J P, 54-106583, A (日本石油化学株式会社) 21. 8月. 1979 (21. 08. 79) (ファミリーなし)	1-4, 9-12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 05. 98

国際調査報告の発送日

26.05.98

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

芦原 ゆりか

4 F

9161

電話番号 03-3581-1101 内線 3432

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 57-59721, A (日東電気工業株式会社) 10. 4 月. 1982 (10. 04. 82) (ファミリーなし)	1-4
X	JP, 60-34834, A (積水成型工業株式会社) 22. 2 月. 1985 (22. 02. 85) (ファミリーなし)	1-4
X	JP, 49-53264, A (大日本印刷株式会社) 23. 5月. 1974 (23. 05. 74) (ファミリーなし)	1-4
Y	JP, 49-107069, A (松下電工株式会社) 11. 10 月. 1974 (11. 10. 74) (ファミリーなし)	5-8

REC'D 21 MAY 1999

WIPO PCT

PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)

[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 F-348PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP98/00713	国際出願日 (日.月.年) 23.02.98	優先日 (日.月.年) 24.02.97
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>8</sup> B32B27/32, C08J5/12, B29C65/02, B29C65/48		
出願人 (氏名又は名称) 積水化学工業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対して訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 2 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
  - II ☐ 優先権
  - III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
  - IV ☐ 発明の単一性の欠如
  - V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
  - VI ☐ ある種の引用文献
  - VII ☐ 国際出願の不備
  - VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 14.09.98	国際予備審査報告を作成した日 28.04.99	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員)  芦原 ゆりか 電話番号 03-3581-1101 内線 3474	4S 9161

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-42 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 5-8, 11, 12 項、 28.01.99 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 1-4, 9, 10 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	5-8, 11, 12	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	5-8, 11, 12	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	5-8, 11, 12	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求項5-8, 11, 12に記載された発明は、国際調査報告に表示された文献および当該発明に関連があると認められる文献に記載されておらず、かつ、当業者にとって自明なものでもない。

## 請 求 の 範 囲

1. (削除)
2. (削除)
3. (削除)
4. (削除)
5.  $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率が  $5 \times 10^{-5}$  ( $/^{\circ}\text{C}$ ) 以下であるポリオレフィン延伸材料の表面に、該ポリオレフィンを溶解する低分子化合物を付着させる工程と、  
前記低分子化合物を付着させた後、加圧・加熱により前記ポリオレフィン延伸材料を接着する工程とを含むことを特徴とするポリオレフィン成形体の製造方法。
6. 前記低分子化合物が、重合性モノマーである請求項 5 に記載のポリオレフィン成形体の製造方法。
7. 前記ポリオレフィン延伸材料がシート状であり、該ポリオレフィン延伸シートが、ポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートに加圧・加熱により接着される請求項 5 または 6 に記載のポリオレフィン成形体の製造方法。
8. 前記ポリオレフィン延伸材料が  $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がマイナスのポリオレフィン延伸シートであり、 $20 \sim 80^{\circ}\text{C}$  の平均線膨張率がプラスのポリオレフィン延伸もしくは未延伸シートと積層され、加圧・加熱により接着されることを特徴とする請求項 5 ～ 7 のいずれかに記載のポリオレフィン成形体の製造方法。

9. (削除)

10. (削除)

11. (補正後) 前記ポリオレフィン延伸材料が、20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面層を一度融解したものであることを特徴とする請求項5～8のいずれかに記載のポリオレフィン成形体の製造方法。

12. (補正後) 20～80℃の平均線膨張率が $5 \times 10^{-5}$  (／℃) 以下であるポリオレフィン延伸材料を熱処理し、その表面を融解する工程と、

前記熱処理が施された前記ポリオレフィン延伸材料の融点未満であって、表面を融解し得る温度で加圧・加熱により該ポリオレフィン延伸材料を接合する工程とを含むことを特徴とする請求項5～8のいずれかに記載のポリオレフィン成形体の製造方法。



P.B.5818 - Patentlaan 2  
2280 HV Rijswijk (ZH)  
☎ +31 70 340 2040  
TX 31651 epo nl  
FAX +31 70 340 3016

Europäisches  
Patentamt

Zweigstelle  
in Den Haag  
Recherchen-  
abteilung

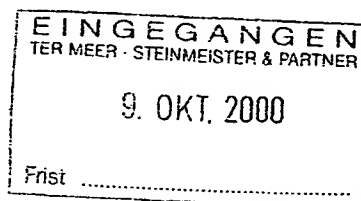
European  
Patent Office

Branch at  
The Hague  
Search  
division

Offic européen  
des brevets

Département à  
La Haye  
Division de la  
recherche

Merkle, Gebhard  
TER MEER STEINMEISTER & PARTNER GbR,  
Patentanwälte,  
Mauerkircherstrasse 45  
81679 München  
ALLEMAGNE



Datum/Date  
10.10.00

Zeichen/Ref./Réf. <b>F-348PCT-EPC-Me</b>	Anmeldung Nr./Application No./Demande n°/Patent Nr./Patent No./Brevet n°. <b>98904407.8-2108-JP9800713</b>
Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire <b>SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.</b>	

## COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits as an enclosure the European search report for the above-mentioned European patent application.

If applicable, copies of the documents cited in the European search report are attached.

☒ Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.

## REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.





DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.6)
✓ X	US 3 201 302 A (EASTMAN KODAK COMPANY) 17 August 1965 (1965-08-17) * claims 1,3,4,6 * * column 2, line 34 - line 40 *	1-6	B32B27/32 C08J5/12 B29C65/02 B29C65/48 //C08L23:02
✓ X	GB 1 118 597 A (CHEMISCHE WERKE HUELS AG) 3 July 1968 (1968-07-03) * claims 1-4,11 *	1-6	
✓ X	EP 0 365 112 A (MINNESOTA MINING & MFG) 25 April 1990 (1990-04-25) * claims 1,2,5-7 * * page 4, line 17 - line 26 *	1,3	
✓ X	US 3 188 258 A (PHILLIPS PETROLEUM COMPANY) 8 June 1965 (1965-06-08) * claims 1,5 *	1,3	
✓ X	US 3 442 737 A (REED THOMAS G JR ET AL) 6 May 1969 (1969-05-06) * claim 1 *	1,2	
✓ X	DATABASE WPI Section Ch, Week 199509 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A18, AN 1995-063939 XP002148400 & JP 06 340849 A (NIPPON ZEON KK), 13 December 1994 (1994-12-13) * abstract *	1,2	TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.6) C08J B32B B29C
✓ X	US 4 871 499 A (AUDOUX CHRISTIAN ET AL) 3 October 1989 (1989-10-03) * claims 1,5-7 * * column 3, line 17 - line 18 *	1	
-/--			
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			
Place of search THE HAGUE		Date of completion of the search 29 September 2000	Examiner Hillebrand, G
CATEGORY OF CITED DOCUMENTS X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document			

4

EPO FORM 1503 03.82 (P04C04)



DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.6)
✓ A	US 5 503 923 A (KAWASHIMA DAIICHIRO ET AL) 2 April 1996 (1996-04-02) * claim 1 *	1	
✓ A	EP 0 737 731 A (NITTO DENKO CORP) 16 October 1996 (1996-10-16) * claim 1 *	1	
✓ A	US 4 872 930 A (KAJIKAWA TERUO ET AL) 10 October 1989 (1989-10-10) * claim 1 *	1	
✓ A	DATABASE WPI Section Ch, Week 199541 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A94, AN 1995-316715 XP002148401 & JP 07 214734 A (SEKISUI CHEM IND CO LTD) , 15 August 1995 (1995-08-15) * abstract *	1	
			TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.6)
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			
Place of search THE HAGUE		Date of completion of the search 29 September 2000	Examiner Hillebrand, G
<div>CATEGORY OF CITED DOCUMENTS</div> <div>X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document</div> <div>T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons ..... &amp; : member of the same patent family, corresponding document</div>			

4

EPO FORM 1503 03.82 (P04C04)

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 98 90 4407

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

29-09-2000

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3201302	A	17-08-1965	NONE	
GB 1118597	A		DE 1258530 B DE 1287240 B FR 1452395 A	07-12-1966
EP 0365112	A	25-04-1990	US 4863792 A AU 607076 B AU 3669389 A BR 8903836 A CA 1311885 A DE 68914774 D DE 68914774 T ES 2053994 T HK 167096 A IL 90657 A JP 2129238 A JP 2851061 B KR 9614024 B MX 165736 B ZA 8904725 A	05-09-1989 21-02-1991 26-04-1990 05-02-1991 29-12-1992 26-05-1994 20-10-1994 01-08-1994 13-09-1996 21-11-1991 17-05-1990 27-01-1999 11-10-1996 02-12-1992 27-06-1990
US 3188258	A	08-06-1965	NONE	
US 3442737	A	06-05-1969	NONE	
JP 6340849	A	13-12-1994	NONE	
US 4871499	A	03-10-1989	FR 2603522 A AT 52446 T CA 1282567 A DE 3762588 D EP 0263728 A JP 1751562 C JP 4038226 B JP 63089342 A	11-03-1988 15-05-1990 09-04-1991 13-06-1990 13-04-1988 08-04-1993 23-06-1992 20-04-1988
US 5503923	A	02-04-1996	JP 2882235 B JP 6305080 A JP 6305081 A JP 6328508 A	12-04-1999 01-11-1994 01-11-1994 29-11-1994
EP 0737731	A	16-10-1996	JP 2952180 B JP 8282722 A JP 9207285 A	20-09-1999 29-10-1996 12-08-1997

EPO FORM P0459

For more details about this annex : see Official Journal of the European Patent Office, No. 12/82

# ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.

EP 98 90 4407

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

29-09-2000

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4872930 A	10-10-1989	JP 1941434 C	23-06-1995
		JP 4050419 B	14-08-1992
		JP 61019886 A	28-01-1986
		AU 573860 B	23-06-1988
		AU 4471685 A	16-01-1986
		DE 3578441 D	02-08-1990
		EP 0171201 A	12-02-1986
JP 7214734 A	15-08-1995	NONE	

4T  
Translation

09/355946  
PATENT COOPERATION TREATY

17C1

PCT

1733

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference F-348PCT	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP98/00713	International filing date (day/month/year) 23 February 1998 (23.02.1998)	Priority date (day/month/year) 24 February 1997 (24.02.1997)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B32B 27/32, C08J 5/12, B29C 65/02, B29C 65/48		
Applicant SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.		

- This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
- This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

- This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

TC 1/001 AVAILABLE FROM  
 REG 1 27  
 PCT/JP/98/00713

Date of submission of the demand 14 September 1998 (14.09.1998)	Date of completion of this report 28 April 1999 (28.04.1999)
Name and mailing address of the IPEA/JP Japanese Patent Office, 4-3 Kasumigaseki 3-chome Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan Facsimile No.	Authorized officer Telephone No. (81-3) 3581 1101

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP98/00713

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages \_\_\_\_\_ 1-42 \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_ 5-8, 11, 12 \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_ 28 January 1999 (28.01.1999)
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  
These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. \_\_\_\_\_ 1-4, 9, 10 \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP98/00713

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	5-8, 11, 12	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	5-8, 11, 12	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	5-8, 11, 12	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

The inventions disclosed in claims 5-8, 11 and 12 are neither disclosed in any of the documents cited in the ISR or any other document considered to bear relation to said inventions, nor are they obvious to a person skilled in the art.